



SKRIPSI – TK141581

**SINTESIS Fe_3O_4 DENGAN METODE
ELEKTROKIMIA SEBAGAI ELEKTROKATALIS
PADA *METAL-AIR BATTERIES***

**OKY IYAN PRATAMA
NRP. 2313100050**

**RIZKIYAH FITRI IZZATI
NRP. 2313100051**

**Dosen Pembimbing
Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.
NIP. 19670203 199102 1 001**

**Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T.
NIP. 19890106 201504 2 002**

**DEPARTEMEN TEKNIK KIMIA
FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA 2017**



FINAL PROJECT – TK141581

**SYNTHESIS OF Fe_3O_4 USING ELECTROCHEMICAL
METHOD AS ELECTROCATALYTIC IN METAL-
AIR BATTERIES**

**OKY IYAN PRATAMA
NRP. 2313100050**

**RIZKIYAH FITRI IZZATI
NRP. 2313100051**

**Dosen Pembimbing
Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.
NIP. 19670203 199102 1 001**

**Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T.
NIP. 19890106 201504 2 002**

**DEPARTMENT OF CHEMICAL ENGINEERING
FACULTY OF INDUSTRIAL TECHNOLOGY
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA 2017**

LEMBAR PENGESAHAN

SINTESIS Fe_3O_4 DENGAN METODE ELEKTROKIMIA SEBAGAI ELEKTROKATALIS PADA *METAL-AIR BATTERIES*

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat Memperoleh Gelar
Sarjana Teknik pada Program Studi S-1 Departemen Teknik Kimia
Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya

Oleh :

Okky Iyan Pratama
Rizkiyah Fitri Izzati

NRP. 2313 100 050
NRP. 2313 100 051

Disetujui oleh Tim Penguji Tugas Akhir :

1. Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.
(Pembimbing)
2. Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T.
(Pembimbing)
3. Dr. Siti Machmudah, S.T., M.Eng.
(Penguji I)
4. Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.
(Penguji II)
5. Dr. Ir. Sumarno, M.Eng.
(Penguji III)



SINTESIS Fe_3O_4 DENGAN METODE ELEKTROKIMIA SEBAGAI ELEKTROKATALIS PADA *METAL-AIR* BATTERIES

Nama : Oky Iyan Pratama
(2313 100 050)
Rizkiyah Fitri Izzati
(2313 100 051)
Departemen : Teknik Kimia FTI – ITS
Pembimbing : Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng
Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T

ABSTRAK

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh pH larutan elektrolit dan voltase terhadap waktu pembentukan Fe_3O_4 , efisiensi sintesis, serta karakteristik produk, mengetahui mekanisme reaksi pembentukan Fe_3O_4 melalui perubahan warna elektrolit, dan mengetahui kinerja magnetite sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *metal-air batteries*. Partikel magnetite disintesis dengan metode elektro oksidasi besi dalam air demin menggunakan multielektroda dan pengadukan selama 3 jam disertai pengamatan perubahan warna dan timbulnya gelembung. Larutan elektrolit yang digunakan divariasi pada pH 7–14 menggunakan voltase 25 V dan didapatkan produk magnetite dengan *surface area* terbesar dan efisiensi terbaik pada variabel pH 9. Kemudian dilanjutkan sintesis magnetite menggunakan variabel voltase 10V, 20V, dan 30V. Produk berupa serbuk hitam dikarakterisasi menggunakan analisa BET, XRD, dan SEM, serta uji kinerja elektrokatalis menggunakan *Cyclic Voltammetry* dan Polarisasi Linier. Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat ditarik kesimpulan bahwa, semakin tinggi pH dalam rentang 8-11 dan semakin tinggi voltase yang digunakan, maka waktu pembentukan Fe_3O_4 semakin cepat. pH larutan elektrolit yang tidak terlalu tinggi atau rendah (pH 9) menghasilkan efisiensi sintesis terbaik sebesar 54%, sedangkan voltase yang digunakan tidak

terlalu berpengaruh. Larutan elektrolit dengan pH tidak terlalu tinggi atau rendah (pH 9) juga menghasilkan *surface area* terbesar yaitu 178,42 m²/g, dan semakin rendah voltase yang digunakan (10V) menghasilkan *surface area* terbesar yaitu 127,09 m²/g. Sedangkan kristalinitas terbaik pada variabel voltase 30 V. Mekanisme reaksi pembentukan magnetite dimulai dari perubahan warna elektrolit dari bening menjadi kuning kecoklatan yang merupakan Fe(OH)₂, kemudian warna coklat kemerahan yang merupakan FeOOH, dan warna hitam yang mengindikasikan terbentuknya Fe₃O₄. Dengan menggunakan analisis *Cyclic Voltammetry* dan *Polarisasi Linear* dapat menunjukkan bahwa partikel magnetite kristal dapat digunakan sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries*.

Kata kunci: Elektrokimia, Magnetite, Elektrokatalis

***SYNTHESIS OF Fe_3O_4 USING ELECTROCHEMICAL
METHOD AS ELECTROCATALYTIC IN METAL-AIR
BATTERIES***

Name : Oky Iyan Pratama
(2313 100 050)
Rizkiyah Fitri Izzati
(2313 100 051)
Department : Teknik Kimia FTI – ITS
Advisor : Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng
Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T

ABSTRACT

The objective of this research is to discover the effect of pH of electrolyte solution and voltage on the formation time of Fe_3O_4 , synthesis efficiency and also product characteristics. This research also aims to understand the performance of magnetite as electrocatalyst of oxygen's reduction reaction in metal-air batteries. The magnetite particles were successfully synthesized via electrooxidation of iron in demineralized water using multielectrode and agitation for 3 hours, followed by observation in color transformation and bubble appearance. Electrolyte solutions were varied at pH 7 – 14 using voltage of 25 V and it were obtained the magnetite products with the widest surface area and the best efficiency at pH 9's variable. Subsequently, this experiment was continued by magnetite synthesis process using voltage variables of 10 V, 20 V and 30 V. Black powder products were then characterized using BET, XRD, SEM and also electrocatalyst performance test using Cyclic Voltammetry and Linear Polarization. According to the conducted experiment, it can be concluded that higher pH in range 8-11 and higher voltage which are utilized will produce more rapid formation time of Fe_3O_4 . pH of electrolyte solution which was not sufficient high or low (pH 9) generated the best synthesis efficiency 54 % while

voltage did not overmuch affect. Electrolyte solution with unsufficient high or low pH (pH 9) also generated the widest surface area of 178,42 m²/g while the lower voltage which was utilized (10V) produced the widest surface area of 127,09 m² /g. Additionally, the best cristalinity was shown by voltage variable 30 V. The reaction mechanism of magnetite reaction was initiated by color transformation of electrolyte from limpud into brownish-yellow color which were Fe(OH)₂, and afterwards the color became reddish-brown which were FeOOH and finally came into black which was indicated as Fe₃O₄ formation. From the analysis using cyclic voltammetry and linear polarizaton, it can be shown that magnetite can be utilized as electrocalayst in metal-air batteries.

Keywords: Electrochemical, Magnetite, Metal-air Batteries

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT yang telah melimpahkan rahmat, karunia, serta hidayah-Nya kepada penyusun sehingga penyusun mampu menyelesaikan Laporan Skripsi yang berjudul **Sintesis Fe_3O_4 dengan Metode Elektrokimia sebagai Elektrokatalis Pada *Metal-Air Batteries***.

Selama penyusunan skripsi ini, penulis mengucapkan terima kasih atas bimbingan, dorongan, serta bantuan kepada:

1. Orang tua serta saudara – saudara kami, untuk doa, bimbingan, perhatian, dan kasih sayang yang selalu tercurah selama ini.
2. Ibu Dr. Widyastuti, S.T., M.T. selaku Kepala Laboratorium Elektrokimia dan Korosi, Bapak Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng selaku Dosen Pembimbing I serta Ibu Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T. selaku Dosen Pembimbing II atas segala bimbingan dan saran yang telah diberikan.
3. Bapak Juwari, S.T., M.Eng, Ph.D, selaku Kepala Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
4. Dosen penguji yang telah memberikan masukan dalam penyempurnaan laporan skripsi ini.
5. Bapak dan Ibu Dosen Departemen Teknik Kimia FTI – ITS yang telah memberikan ilmunya kepada penulis serta seluruh karyawan Departemen Teknik Kimia.
6. Teman-teman seperjuangan Laboratorium Elektrokimia dan Korosi yang membantu memberikan *support* dan keceriaan dalam penyusunan tugas akhir ini.
7. Teman-teman K-53 yang telah menemani selama suka duka pembuatan tugas akhir ini.

Penyusun menyadari bahwa laporan ini masih jauh dari kesempurnaan. Oleh karena itu, kritik dan saran yang membangun sangat diharapkan penulis

Surabaya, Juli 2017

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PENGESAHAN	iii
ABSTRAK	iv
ABSTRACT	vi
KATA PENGANTAR	viii
DAFTAR ISI	ix
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR TABEL	xii
BAB I PENDAHULUAN	
I.1 Latar Belakang	1
I.2 Rumusan Masalah	3
I.3 Tujuan Penelitian	3
I.4 Manfaat Penelitian	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
II.1 <i>Metal-air Batteries</i>	5
II.2 Magnetite	6
II.3 Elektrokimia	7
II.4 Proses Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia	8
II.5 Magnetite sebagai Elektrokatalis pada <i>Metal-air Batteries</i> ..	11
II.6 Studi Hasil Sebelumnya	12
BAB III METODOLOGI PENELITIAN	
III.1 Gambaran Besar Penelitian	15

III.2 Alat dan Bahan Penelitian	15
III.2.1 Alat Penelitian	15
III.2.2 Bahan Penelitian	17
III.3 Eksperimen	18
III.4 Uji Karakterisasi Produk	19
III.5 Uji Fe_3O_4 sebagai Elektrokatalis Reduksi O_2 pada <i>Metal-air Batteries</i>	21
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	
IV.1 Pengaruh pH Larutan Elektrolit dan Voltase terhadap Waktu Pembentukan Fe_3O_4 , Efisiensi Sintesis, dan Karakteristik Fe_3O_4	26
IV.1.1 Pengaruh pH Larutan Elektrolit	26
IV.1.2 Pengaruh Voltase Sintesis	32
IV.2 Mekanisme Reaksi Pembentukan Magnetite	36
IV.3 Kinerja Magnetite sebagai Elektrokatalis	40
IV.3.1 Hasil Uji <i>Cyclic Voltammetry</i>	40
IV.3.2 Hasil Uji Polarisasi Linier	42
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	
V.1 Kesimpulan	45
V.2 Saran	46
DAFTAR PUSTAKA	xiii
APPENDIKS	xiv

DAFTAR GAMBAR

Gambar II.1	Struktur dan Prinsip Kerja <i>Metal-air Batteries</i>	5
Gambar II.2	Jenis Sel Elektrokimia.....	8
Gambar II.3	Mekanisme Pembentukan Magnetite	9
Gambar II.4	Sistem Keseimbangan Fe-air pada 25°C.....	10
Gambar II.5	Skema Elektrokatalis pada <i>Metal-Air Batteries</i> ...	12
Gambar III.1	Diagram Alir Penelitian.....	13
Gambar III.2	Skema Alat Percobaan Sintesis Fe ₃ O ₄	13
Gambar III.3	Skema Konfigurasi Rangkaian Elektroda (Tampak Atas).....	14
Gambar III.4	Pola XRD Standart Fe ₃ O ₄	14
Gambar III.5	Skema Uji Elektrokatalis	15
Gambar IV.1	Serbuk Magnetite Hasil Sintesis.....	25
Gambar IV.2	Citra SEM Partikel Magnetite Hasil Sintesis pada pH 9 25V dengan Perbesaran 20.000x (a) Sebelum <i>pretreatment</i> (b) Sesudah <i>pretreatment</i>	25
Gambar IV.3	Perubahan Warna Elektrolit	26
Gambar IV.4	Kenampakan Fisik Serbuk Magnetite pada Voltase 25 V dengan Variasi pH Larutan Elektrolit (a) 7 (b) 8 (c) 9 (d) 10 (e) 11	28
Gambar IV.5	Pola XRD Serbuk Magnetite Hasil Sintesis Variasi pH larutan Elektrolit pada 25 V	29
Gambar IV.6	Kenampakan Fisik Serbuk Magnetite pada pH 9 dengan Variasi Voltase Sintesis (a) 10V (b) 20V dan (c) 30V	33
Gambar IV.7	Pola XRD Serbuk Magnetite Hasil Sintesis dengan Voltase Sintesis pada pH 9.....	33
Gambar IV.8	Hasil Analisa XRD Endapan Coklat Kemerahan. 38	
Gambar IV.9	Mekanisme Pembentukan Magnetite	39
Gambar IV.10	Hasil Uji <i>Cyclic Voltametri</i> pada (a) pada Variasi pH (b) pada Variasi Voltase	41
Gambar IV.11	Hasil Uji Polarisasi Linier pada (a) daerah terjadinya ORR (b) daerah terjadinya	43

DAFTAR TABEL

Tabel II.1	Studi Hasil Penelitian Sebelumnya	12
Tabel III.1	Komposisi pada Plat Besi	16
Tabel III.2	Nilai Potensial Reduksi terhadap Elektroda Pembanding Ag/AgCl terhadap Elektroda Pembanding NHE.....	22
Tabel IV.1	Waktu Pembentukan Partikel Magnetite Variabel pH .	27
Tabel IV.2	Persen Kristalinitas Partikel Magnetite Variasi pH Larutan Elektrolit	29
Tabel IV.3	Efisiensi Proses pada Variabel pH Larutan Elektrolit dengan 25 V	31
Tabel IV.4	<i>Surface Area</i> dan Diameter Partikel Variasi pH	26
Tabel IV.5	Waktu Pembentukan Partikel Magnetite pada Variasi Voltase	32
Tabel IV.6	Persen Kristalinitas Partikel Magnetite Variasi Voltase Sintesis	34
Tabel IV.7	Efisiensi Proses pada Voltase Sintesis dengan pH 9.....	34
Tabel IV.8	<i>Surface Area</i> dan Diameter Partikel Magnetite Variasi Voltase	33
Tabel IV.9	Hasil Pengamatan Visual Variabel Larutan Elektrolit pH 8 dan 25 V	34
Tabel IV.10	<i>Peak List</i> pada Endapan Coklat Kemerahan	38
Tabel IV.11	Potensial Reaksi Reduksi Hasil Uji CV	41
Tabel IV.12	<i>Current Density</i> Tertinggi pada Daerah ORR.....	44

BAB I

PENDAHULUAN

I.1 Latar Belakang

Dengan semakin meningkatnya kebutuhan energi dan keterbatasan sumber energi dibutuhkan sumber energi baru yang dapat diperbarui dan mudah untuk didapatkan. *Metal-air batteries* merupakan salah satu sumber energi baru yang memiliki nilai energi yang tinggi dan dapat dimanfaatkan sebagai sumber energi pada barang-barang elektronik, transportasi listrik, dan sebagai tempat penyimpanan energi yang baik. *Metal-air batteries* terdiri dari kombinasi antara metal dengan densitas energi yang tinggi (Zn, Al, Mg, Li) pada bagian anoda dan pada bagian katoda terdapat elektrokatalis seperti logam mulia, campuran logam dengan karbon, dan oksida logam transisi yang berfungsi untuk mereduksi oksigen didalam udara (Cheng dan Chen, 2012). Salah satu oksida logam transisi yang dapat digunakan untuk mereduksi oksigen sebagai elektrokatalis adalah magnetite (Fe_3O_4).

Magnetite (Fe_3O_4) merupakan salah satu bentuk oksida besi di alam selain maghemite ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$) dan hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$). Magnetite dikenal sebagai oksida besi hitam (*black iron oxide*) atau *ferrous-ferric oxide*, yang merupakan oksida logam yang paling kuat sifat magnetisnya (Teja dan Koh, 2008). Sifat superparamagnetis ini memungkinkan pemanfaatan partikel magnetite dalam berbagai aplikasi di antaranya sebagai perekat dan tinta magnetik, media perekam magnetik, dan elektrokatalis.

Sintesis partikel magnetite telah dikembangkan dengan berbagai metode, baik konvensional (seperti kopresipitasi), maupun inovatif (misalnya *sol-gel*, *spray drying*, hidrotermal, sonokimia, dan elektrokimia) dengan tujuan mendapatkan metode sintesis yang efektif dan efisien. Salah satu metode sederhana yang efektif, efisien, dan ramah lingkungan yang telah dikembangkan adalah metode elektrokimia yang berbasis elektro-oksidasi besi dalam air demineralisasi (Fajaroh *dkk*, 2012). Dengan metode yang dikembangkan partikel magnetite berhasil dideposisikan di daerah

anoda, dimana anoda ini merupakan lapisan tipis besi hasil *electroplating*. Dengan metode elektrokimia, kristalinitas dan ukuran partikel yang dihasilkan dapat dikontrol dengan mengatur parameter sel elektrokimia seperti rapat arus/tegangan listrik yang dialirkan atau juga konsentrasi elektrolit (Setyawan dkk., 2012)

Hasil sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia yang telah dilakukan oleh Raharjo dan Sentosa (2009) diketahui bahwa partikel magnetite yang dihasilkan masih mengandung *impurities* yang diduga FeOOH . Febriana dan Januarita (2010) mensintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia dan dari penelitian yang dilakukan diketahui bahwa partikel magnetite yang dihasilkan mengandung *impurities* yang diduga FeOOH dimana diameter partikel magnetite dipengaruhi oleh tegangan/rapat arus dan jarak antarelektroda.

Untuk menghilangkan *impurities*, Fajaroh dkk mengusulkan dua metode, yaitu PDC dan pelapisan silika pada Fe_3O_4 dan cara ini berhasil menghilangkan *impurities*. Namun, permasalahan lain adalah yield produk dan rate produksi yang relatif rendah. Hal ini dikarenakan sintesis Fe_3O_4 menggunakan *constant applied voltage* 2 V tanpa disertai pengadukan.

Terdapat empat cara yang dapat dilakukan untuk meningkatkan rate produksi. Pertama, melakukan sintesis dengan disertai pengadukan untuk memperluas area kontak ion. Kedua, menggunakan multielektroda untuk memperbanyak ion OH^- dari reduksi air demin. Ketiga, menggunakan konfigurasi zig zag. Keempat, memperkecil jarak antarelektroda sehingga mampu memperkecil hambatan antarelektroda.

Meiditaharja dan Dewayanti (2016) telah mengembangkan sintesis magnetite dengan metode elektrokimia tanpa proses *electroplating* menggunakan multielektroda. Sintesis yang dilakukan menggunakan variasi pH elarutan elektrolit 7, 9, 10, dan 11 dengan variasi beda potensial sebesar 20 V, 25 V, dan 30 V, serta konfigurasi anoda dan katoda berbentuk zig-zag dan monopolar. Hasil yang didapat dari sintesis ini adalah partikel magnetite yang memiliki luas permukaan paling besar pada

konfigurasi anoda dan katoda berbentuk zig-zag dan yield pembentukan magnetite paling besar pada pH 11 dengan beda potensial 25 V. Akan tetapi pada penelitian ini belum terdapat hasil sintesis magnetite pada pH 8, 12, 13, dan 14 serta bukti yang menunjukkan bahwa konfigurasi anoda dan katoda berbentuk zig-zag menghasilkan serbuk magnetite lebih banyak.

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan sebelumnya, dalam penelitian ini akan dilakukan percobaan untuk mensintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia menggunakan multielektroda tanpa menggunakan proses *electroplating* sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries*.

I.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang masalah yang ada, maka pada penelitian ini masalah difokuskan pada:

1. Bagaimana pengaruh kondisi awal operasi (pH larutan elektrolit dan voltase) terhadap waktu pembentukan Fe_3O_4 , efisiensi sintesis, dan karakteristik Fe_3O_4 yang dihasilkan?
2. Bagaimana pengaruh perubahan warna elektrolit terhadap mekanisme reaksi pembentukan Fe_3O_4 ?
3. Bagaimana kinerja magnetite sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *Metal-Air Batteries*?

I.3 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Mengetahui pengaruh kondisi awal operasi (pH larutan elektrolit dan voltase) terhadap waktu pembentukan Fe_3O_4 , efisiensi sintesis, dan karakteristik produk yang dihasilkan.
2. Mengetahui mekanisme reaksi pembentukan Fe_3O_4 melalui perubahan warna elektrolit.
3. Mengetahui kinerja magnetite sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *Metal-Air Batteries*.

I.4 Manfaat Penelitian

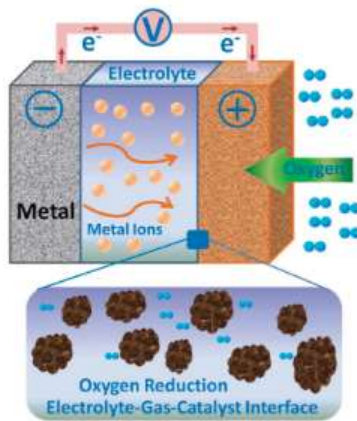
1. Mengetahui sintesis partikel magnetite melalui metode elektrokimia menggunakan multielektroda dan kenerjanya sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *metal-air batteries*.
2. Memberikan kontribusi berupa data-data teknis untuk penelitian lebih lanjut.
3. Menciptakan aplikasi-aplikasi baru yang berbasis industri partikel melalui proses elektrokimia menggunakan multielektroda.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

II.1 *Metal-air Batteries*

Metal-air batteries merupakan salah satu sumber energi baru yang memiliki nilai energi yang tinggi dan dapat dimanfaatkan sebagai sumber energi pada barang-barang elektronik, transportasi listrik, dan sebagai tempat penyimpanan energi yang baik. *Metal-air batteries* terdiri dari kombinasi antara metal dengan densitas energi yang tinggi (Zn, Al, Mg, Li) pada bagian anoda dan pada bagian katoda terdapat elektrokatalis seperti logam mulia, campuran logam dengan karbon, dan oksida logam transisi yang berfungsi untuk mereduksi oksigen didalam udara.



Gambar II.1 Struktur dan Prinsip Kerja *Metal-air Batteries*

Dalam perkembangannya, teknologi *metal – air battery* memiliki beberapa kelemahan diantaranya adalah efisiensi rendah pada anoda dan reaksi pada katoda yang cukup lambat. Masalah yang sering timbul pada anoda adalah terbentuknya passivasi. Passivasi adalah lapisan tambahan yang terbentuk di sekitar elektroda sehingga menghambat masuknya oksigen kedalam elektroda. Passivasi ini menyebabkan terbentuknya akumulasi oksida logam, hidroksida, dan senyawa lain menyebabkan

terhambatnya proses *discharging* material aktif yang ada. *Self-discharge* dan korosi pada anoda logam menurunkan efisiensi pada anoda dan memperpendek umur baterai. Sedangkan pada katoda masalah yang sering timbul adalah reaksi yang cukup lambat, overpotensial, dan rendahnya reaksi *reversible* oksigen yang meliputi reaksi reduksi oksigen (ORR) serta reaksi evolusi oksigen (OER).

Metal Air Battery terdiri dari anoda logam, katoda berpori, dan elektrolit. Anoda logam berperan sebagai oksidator dan melepaskan elektron keluar baterai ketika proses *discharge*. Pada saat yang sama, oksigen akan berdifusi ke dalam katoda, menerima elektron dari anoda dan oksigen mengalami reduksi lalu bereaksi dengan ion logam menjadi senyawa logam oksida. Pada saat sel mengalami proses *charging* (untuk *rechargeable metal air battery*), proses ini akan berbalik dengan terjadinya reaksi evolusi oksigen (OER) di dalam larutan elektrolit. Reaksi dan produk pada *metal – air battery* akan bervariasi hal ini ditentukan oleh jenis logam, elektrolit, dan katalis yang digunakan.

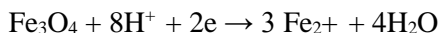
II.2 Magnetite

Magnetite merupakan salah satu jenis besi oksida yang sering digunakan secara luas. Besi oksida merupakan senyawa yang terdiri dari besi dan oksigen. Besi oksida tersebar luas di alam dan memiliki peran penting di berbagai proses geologi dan biologi serta dalam tubuh manusia seperti hemoglobin. Terdapat beberapa jenis besi oksida seperti wustite (FeO), magnetite (Fe_3O_4), iron (II,III) oxide (Fe_4O_5), hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), $\beta\text{-Fe}_2\text{O}_3$, maghemite ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$), dan $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$. Magnetite (Fe_3O_4) merupakan mineral yang memiliki sifat superparamagnetik. Senyawa ini berbentuk kristal oktahedral berwarna hitam atau keabu-abuan.

Magnetite memiliki struktur kristal spinel terbalik dengan ion Fe(III) terdistribusi secara random pada sisi oktahedral dan tetrahedral, ion Fe(II) berada dalam sisi oktahedral, dan atom oksigen yang membentuk susunan kubus pusat muka (*cubic closed-packed, ccp*).

Dalam satu unit sel terdapat sebuah sisi tetrahedral dan dua buah sisi octahedral. Pemahaman sifat-sifat magnetite diperlukan dalam identifikasi, karakterisasi, dan optimasi aplikasi magnetite di berbagai bidang.

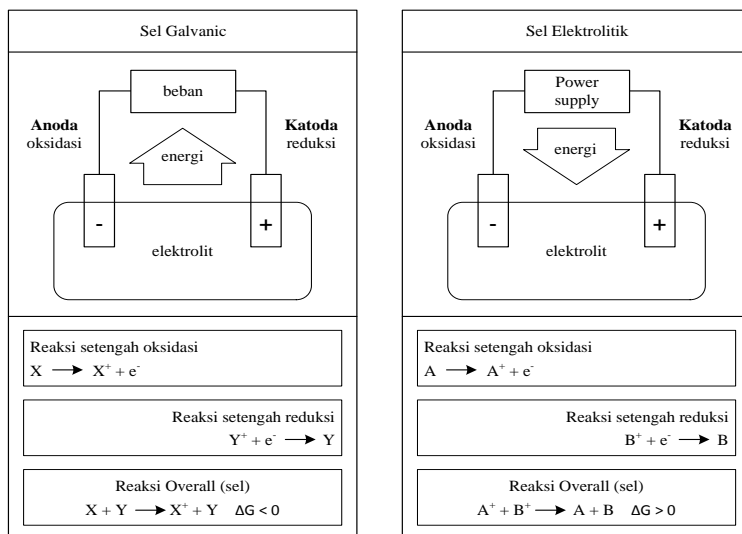
Kelarutan magnetite dalam air rendah (K_{sp} antara 10^{-44} sampai 10^{-34}), namun kelarutannya lebih mudah dalam asam dibanding oksida besi lainnya, Mekanisme pelarutan magnetite dalam asam dapat berlangsung melalui reaksi redoks, yakni berupa reaksi reduksi atau oksidasi magnetite oleh H^+ menjadi Fe^{+2} atau Fe^{+3} (Cornell dan Schwertmann, 2003) sesuai persamaan berikut:



II.3 Elektrokimia

Elektrokimia adalah ilmu yang mempelajari akibat transfer muatan listrik dari satu fasa ke fasa lain. Elektrokimia juga bisa diartikan sebagai studi tentang hubungan antara perubahan kimia dan kerja listrik. Elektrokimia dipelajari melalui penggunaan sel elektrokimia yang merupakan sistem dengan memasukkan reaksi redoks untuk menghasilkan atau menggunakan energi listrik.

Ada dua tipe sel elektrokimia yaitu sel Galvani dan sel Elektrolisis. Sel Galvani bekerja dengan melepaskan energi bebas dari reaksi spontan untuk menghasilkan listrik, sedangkan sel elektrolisis bekerja dengan menyerap energi bebas dari sumber listrik untuk menggerakkan reaksi tak spontan.



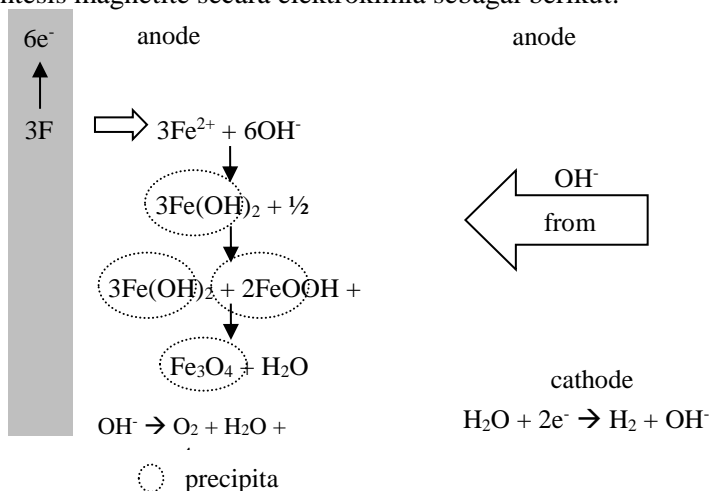
Gambar II.2 Jenis Sel Elektrokimia

II.4 Proses Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia

Proses sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia menggunakan prinsip kerja elektrokimia yang melibatkan transfer elektron antara permukaan logam dan larutan elektrolitnya. Cara kerjanya berdasarkan sel elektrolisis, yang menggunakan sumber listrik untuk membangkitkan reaksi kimianya.

Metode elektrokimia ini menggunakan multielektroda dan larutan elektrolit. Pada proses ini terjadi reaksi oksidasi di anoda (elektroda positif) dan reaksi reduksi di katoda (elektroda negatif). Oksidasi sendiri dapat diartikan reaksi kehilangan elektron, sedangkan reduksi menerima elektron. Kelebihan dari metode elektrokimia ini adalah lebih efisien dibandingkan dengan metode lain. Ukuran partikel yang dihasilkan dapat dikontrol dengan mengatur besar beda potensial yang dialirkan.

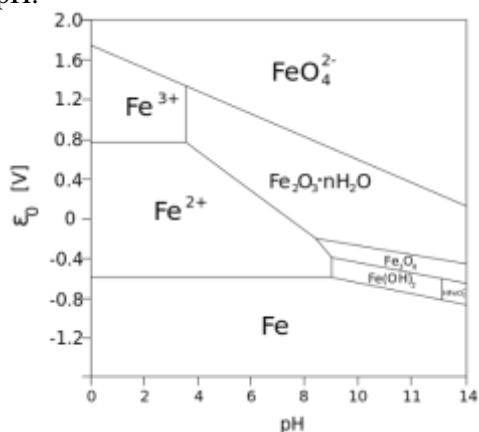
Fajaroh, dkk (2012) mengajukan mekanisme reaksi pembentukan partikel magnetite dengan elektrolit air demin. Elektroda yang berupa lempeng besi mula-mula mengalami oksidasi menjadi ion Fe^{2+} . Kemudian ion Fe^{2+} bereaksi dengan ion hidroksida yang terkandung dalam air demin membentuk fero hidroksida. Selanjutnya, Fe_3O_4 terbentuk sebagai hasil reaksi dehidrasi fero hidroksida dan feri oksihidroksida, keduanya adalah senyawa yang diproduksi oleh oksidasi parsial fero hidroksida dengan O_2 terlarut. Adapun Gambar 2.2 menunjukkan mekanisme sintesis magnetite secara elektrokimia sebagai berikut:



Gambar II.3 Mekanisme Pembentukan Magnetite

Tampak dalam mekanisme di atas bahwa pembentukan FeOOH sangat berperan bagi pembentukan Fe_3O_4 . Untuk itu dibutuhkan suasana basa yang ditentukan oleh konsentrasi OH^- di daerah anoda. Konsentrasi ion OH^- sebagai hasil reaksi reduksi air di katoda dapat diperbesar oleh peningkatan rapat arus. Peningkatan rapat arus pun akan memperbesar O_2 terlarut sebagai hasil oksidasi air di anoda. Dengan demikian dapat disimpulkan bahwa rapat arus merupakan parameter yang harus dikontrol pada sintesis nanopartikel Fe_3O_4 dengan metode elektrokimia.

Salah satu hal yang perlu diperhatikan dalam proses elektrolisis adalah seberapa besar beda potensial yang harus dipasang diantara kedua elektroda agar reaksi dapat berlangsung. Karena elektrolisis berlangsung dalam suatu sel yang terdiri atas sirkuit internal dan eksternal, maka beda potensial yang mampu menghasilkan reaksi akan sangat dipengaruhi oleh banyak faktor antara lain adanya potensial drop yang disebabkan oleh adanya pembebanan arus pada alat ukur atau pada sumber tegangan itu sendiri, overpotensial. Faktor-faktor ini akan menaikkan potensial yang terpasang pada sel elektrolisis, termasuk dalam elektrosintesis ini, sehingga kisaran potensial yang diterapkan untuk mendapatkan magnetite misalnya akan lebih besar dari nilai-nilai kesetimbangan seperti yang diperkirakan oleh diagram Pourbaix seperti tampak dalam gambar 2.3 diagram tersebut menggambarkan kesetimbangan dan transformasi diantara Fe, ion besi, oksida, dan hidroksidanya dalam sistem berair, termasuk transformasi dari $\text{Fe} \rightarrow \text{Fe}(\text{OH})_2 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$ yang bergantung pada voltase dan pH.

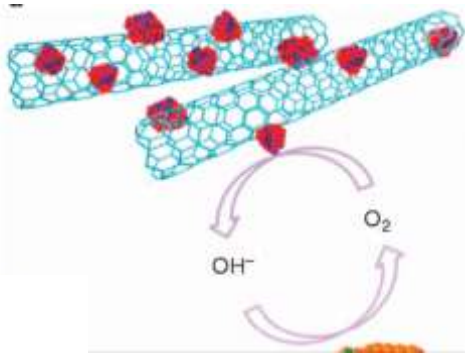


Gambar II.4 Sistem Kesetimbangan Fe-air pada 25°C

Itulah sebabnya karakter nanopartikel magnetite yang dihasilkan secara elektrokimia ini dipengaruhi oleh parameter elektrokimia seperti voltase dan kondisi elektrolit termasuk pH.

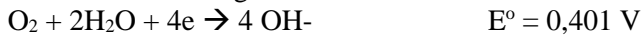
II.5 Magnetite sebagai Elektrokatalis pada *Metal-Air Batteries*

Reaksi pada katoda secara umum berlangsung menggunakan elektrokatalis. Beberapa jenis bahan telah digunakan sebagai elektrokatalis pada *metal – air battery* diantaranya logam mulia, campuran logam, logam transisi, dan logam dari senyawa makrosiklik. Logam dari golongan transisi merupakan jenis yang paling sering digunakan hal ini dikarenakan keberlimpahannya, murah, dan ramah lingkungan. Walaupun beberapa senyawa kurang stabil pada media asam, namun senyawa – senyawa dari golongan ini cukup stabil pada elektrolit basa. Logam golongan transisi dikenal memiliki sejumlah valensi. Contohnya adalah Mn yang memiliki lebih dari satu valensi diantaranya logam besi. Pada ORRs, senyawa Fe berperan sebagai *oxygen acceptor*/donor mediator dan membantu transfer elektron. Dalam penggunaannya sebagai katalis untuk penelitian ini, Fe_3O_4 membutuhkan katalis *support* yaitu *Nickel foam*. Fe_3O_4 akan dibentuk menjadi larutan homogen seperti tinta yang kemudian dicetak pada *Nickel foam*. Nanopartikel Fe_3O_4 akan mengisi pori – pori dari *Nickel foam*. Kombinasi dari *Nickel foam* dan Fe_3O_4 ini yang akan berperan sebagai elektrokatalis pada katoda dengan menerima elektron dari anoda untuk mereduksi oksigen dari udara. Selain itu dengan adanya elektrokatalis dapat menghindari terbentuknya passivasi sehingga meningkatkan kemampuan *metal-air battery*. Berikut adalah mekanisme terjadinya reaksi reduksi dan evolusi oksigen terlampir pada Gambar II.5.



Gambar II.5 Skema Elektrokatalis pada *Metal Air Battery*

Elektrokatalis mempercepat terjadinya *Oxygen Reduction Reaction* (ORR) dan *Oxygen Evolution Reaction* (OER). ORR adalah reaksi reduksi oksigen yang masuk melalui pori – pori katoda yang kemudian digunakan untuk bereaksi dengan logam anoda membentuk oksida logam. Reaksi yang terjadi pada ORR secara umum adalah sebagai berikut:



Kebalikan dari ORR adalah OER dimana akan dihasilkan oksigen dari ion hidroksida yang kemudian digunakan untuk reaksi balik sel ketika dalam fase *charging*. Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut:



II.6 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya

Tabel II.1 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya

No.	Peneliti	Metode	Hasil Penelitian
1.	Fajaroh <i>dkk.</i> (2012)	<ul style="list-style-type: none"> Elektrode: besi (1 pasang) Elektrolit <i>electroplating</i>: larutan $FeSO_4$ 	Nanopartikel magnetite berdiameter 5 – 27 nm dengan pengotor $FeOOH$

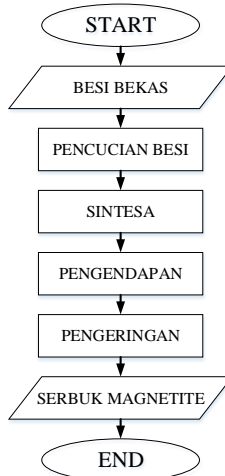
		<ul style="list-style-type: none"> • Elektrolit elektrolisis: air demin • Tahapan sintesa: <i>electroplating</i> dan elektrolisis • Voltase: 10-20 V • Waktu <i>electroplating</i>: 8 jam • Waktu elektrolisis: 12 jam 	dengan yield 0,3 – 0,7 gram
2.	Pusfitasari dan Rachman (2015)	<ul style="list-style-type: none"> • Elektroda: besi (1 pasang) • Elektrolit <i>electroplating</i>: larutan FeSO_4 • Elektrolit: air demin dengan penambahan sodium silikat • Tahapan sintesa: <i>electroplating</i> dan elektrolisis • Voltase: 10 volt • Waktu <i>electroplating</i>: 8 jam • Waktu elektrolisis : 20 jam 	Nanopartikel magnetite berbalut silika dengan diameter 20 – 30 nm
3.	Chandra dan Kantanegara (2015)	<ul style="list-style-type: none"> • Elektroda: Karbon (1 pasang) • Elektrolit <i>electroplating</i>: larutan FeSO_4 • Elektrolit: air demin dengan penambahan EDTA 	Nanopartikel magnetite dengan diameter 33 nm dengan pengotor maghemite

		<ul style="list-style-type: none"> • Tahapan sintesa: <i>electroplating</i> dan elektrolisis • Voltase: 5 volt • Waktu <i>electroplating</i>: 8 jam • Waktu elektrolisis: 20 jam 	
4.	Meiditaharja dan Dewayanti (2016)	<ul style="list-style-type: none"> • Elektroda Besi (4 pasang) • Elektrolit: Larutan NaOH • Tahapan sintesa: elektrolisis • Voltase: 20, 25, 30 volt • pH elektrolit: 7, 9, 10, 11 • Waktu elektrolisis: 3 jam 	Nanopartikel magnetite dengan diameter 20 – 44 nm

BAB III METODOLOGI PENELITIAN

III.1 Gambaran Besar Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari proses sintesis magnetite. Partikel magnetite disintesis dari larutan elektrolit air demin dengan metode elektrokimia menggunakan multielektroda. Sebelum memulai proses sintesa dilakukan pencucian elektroda besi dengan larutan HCl. Kemudian elektroda ini digunakan pada proses sintesis Fe_3O_4 dengan dialiri *Direct Current* (DC) dengan variasi voltase dan pH larutan elektrolit. Dalam proses sintesis, larutan elektrolit yang digunakan adalah air demin dengan atau tanpa penambahan NaOH sebagai sumber ion OH^- tambahan. Endapan yang dihasilkan, kemudian dipisahkan dan dikeringkan untuk mendapatkan partikel Fe_3O_4 . Partikel yang dihasilkan kemudian dianalisa dengan XRD, SEM, dan BET.



Gambar III.1 Diagram Alir Penelitian

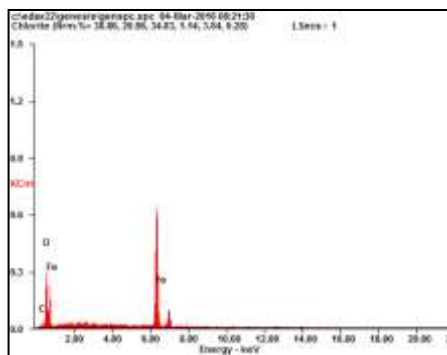
III.2 Alat dan Bahan Penelitian

III.2.1 Alat Penelitian

Pada penelitian ini alat yang digunakan antara lain:

1. Elektroda plat besi dengan ukuran 81 mm x 28 mm x 0,5 mm
2. *Beaker glass* 5 liter
3. *Magnetic stirrer*
4. pH meter
5. *Petridish*
6. *Oven*
7. Neraca analitik
8. Sumber arus menggunakan catu daya *Direct Current* (DC) 10-30 V (*GW Instek GPC-M Series*)

Plat besi yang digunakan diuji karakteristik menggunakan EDX untuk mengetahui komposisi yang ada didalam besi tersebut. Hasil analisa EDX dapat dilihat pada gambar III.2 dan tabel III.1.



Gambar III.2 Hasil Analisa EDX Plat Besi

Tabel III.1 Komposisi pada Plat Besi

Unsur	Persentase (%)
Fe	66,1
O	30,5
C	3,4

Dari hasil EDX plat besi, selain unsur Fe sebesar 66,1% yang ada terdapat unsur-unsur lain yaitu unsur O sebesar 30,5% dan C 3,4%. Unsur O mengindikasikan bahwa sebagian besi yang digunakan telah teroksidasi sedangkan unsur C mengindikasikan bahwa terdapat campuran baja pada plat besi tersebut sehingga plat besi tersebut dapat digolongkan sebagai plat besi baja.

III.2.2 Bahan Penelitian

Pada penelitian ini bahan yang digunakan antara lain:

1. Air demin
2. Larutan HCl 37%
3. NaOH

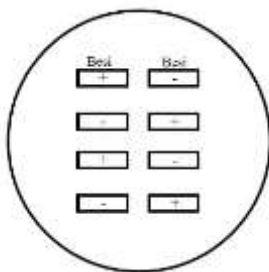
Skema alat percobaan untuk sintesis Fe_3O_4 dapat dilihat pada Gambar III.3.



Gambar III.3 Skema Alat Percobaan Sintesis Fe_3O_4

Pada penelitian ini menggunakan jenis rangkaian dengan meletakkan katoda dan anoda membentuk zig-zag, dimana katoda dan anoda bergantian diletakkan berlawanan. Jarak tiap pasang elektroda adalah 2 cm, dan jarak antarelektroda per pasang adalah $\pm 0,5$ cm. Dimensi plat besi yang tercelup adalah 79 mm x 28 mm x 0,5 mm, dengan total 8 plat besi yang digunakan. Skema

konfigurasi rangkaian yang digunakan dapat dilihat pada Gambar III.4 berikut:



Gambar III.4 Skema Konfigurasi Rangkaian Elektroda (Tampak Atas)

III.3 Eksperimen

Mengacu dari hasil penelitian sebelumnya, bahwa konfigurasi rangkaian berbentuk zig-zag akan menghasilkan serbuk magnetite dalam jumlah yang lebih banyak daripada konfigurasi rangkaian berbentuk monopolar. Sehingga, pada penelitian ini hanya menggunakan satu jenis konfigurasi elektroda, yaitu konfigurasi zig zag.

Sebelum melakukan sintesis, plat besi yang akan digunakan sebelumnya dianalisa menggunakan analisa EDX (*Energy Dispersion X-ray spectroscopy*) untuk mengetahui komposisi unsur yang terkandung di dalamnya. Selanjutnya, plat besi yang telah dianalisa dilakukan pencucian menggunakan larutan HCl 37% untuk menghilangkan karat yang menempel. Setelah dikeringkan, keempat pasang plat besi disusun menurut konfigurasi elektroda zig-zag.

Sintesis dilakukan pada *beaker glass* berukuran 5 liter yang berisi larutan elektrolit dengan volume 2200 ml. Larutan elektrolit yang digunakan berupa air demin dengan pH 7 yang kemudian akan ditambahkan NaOH untuk mengondisikan larutan mencapai variabel pH 7 – 14. Selanjutnya, masing-masing variabel

pH diuji menggunakan beda potensial 25 V untuk mengetahui variabel pH yang akan menghasilkan serbuk magnetite terbaik.

Setelah didapatkan variabel pH larutan yang menghasilkan serbuk magnetite terbaik, kemudian dilakukan pengujian menggunakan variabel voltase 10V, 20V dan 30V pada pH larutan yang telah ditentukan.

Sintesis berlangsung dengan cara mengelektrolisis plat besi selama 3 jam dengan disertai pengadukan menggunakan *magnetic stirrer*. Perubahan warna larutan dan pH anoda akan diamati setiap saat. Setelah 3 jam, presipitat yang terbentuk dikeringkan dalam *oven* bersuhu 80°C selama ± 12 jam. Setelah diperoleh serbuk magnetite, dilakukan uji karakterisasi pada produk.

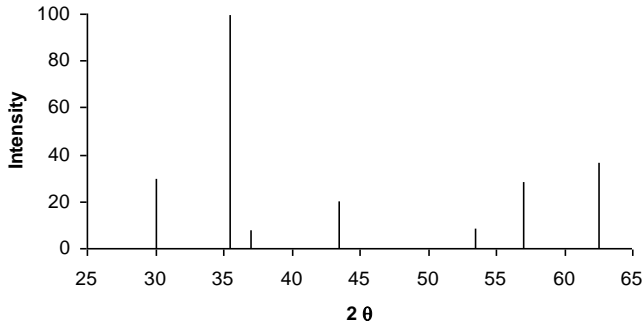
III.4 Uji Karakterisasi Produk

Pengujian karaktersitik produk yang dilakukan untuk mengamati properti antara lain:

1. Mengidentifikasi Jenis dan Kristalinitas Produk

Karakterisasi kristal murni dilakukan dengan menggunakan analisis *X-ray Powder Diffraction* (XRD). Sampel hasil sintesis diuji menggunakan XRD tipe *Philips X'Pert*. Pengujian dilakukan di Laboratorium Material dan Metalurgi, ITS Surabaya. Pengukuran ini dilakukan pada sudut $15 - 65^\circ$ dan step size $0,04^\circ$ dengan tegangan 40 kV dan arus 30 mA menggunakan target Cu ($\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$). Kemudian dari hasil XRD ini dilakukan identifikasi fasa. Pola difraksi yang berupa posisi dan intensitas relatif puncak difraksi dibandingkan dengan pola difraksi standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-629) untuk mengetahui apakah bentuk material berupa amorf atau kristal.

Untuk partikel Fe_3O_4 yang berbentuk amorf, puncak XRD tampak landai. Sebaliknya bila puncak XRD cukup tajam, maka partikel tersebut berbentuk kristal. Dan bila pola difraksi yang terbentuk memiliki kemiripan dengan pola difraksi standar Fe_3O_4 , maka dapat dipastikan material itu berupa Fe_3O_4 .



Gambar III.5 Pola XRD standar Fe₃O₄

2. Mengetahui Diameter, Luas Permukaan, dan Volume Pori

Diameter partikel rata-rata diukur secara tidak langsung dengan mengukur luas permukaan spesifik menggunakan metode *Brunauer–Emmett–Teller* (BET) tipe *Nova 1200e-Quantachrome*. Pengukuran ini dilakukan dengan cara material dikelilingi oleh gas dan membentuk kesetimbangan pada temperatur dan tekanan uap relatif tertentu. Diameter partikel rata-rata diukur secara tidak langsung dengan mengukur luas permukaan spesifik menggunakan BET. Sehingga, diameter partikel dapat dihitung melalui persamaan berikut:

$$\text{Diameter partikel} = \frac{6}{\rho \times a_s}$$

Dimana, ρ = densitas partikel magnetite = 5127,58 kg/m³,
 a_s = *surface area* (m²/g).

Sedangkan *surface area* dihitung berdasarkan jumlah gas yang teradsorpsi.

3. Mengetahui Morfologi Produk

Karakterisasi produk dengan menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) bertujuan untuk mengetahui morfologi produk partikel magnetite yang dihasilkan. Pengujian dilakukan di Laboratorium Material dan Metalurgi, ITS Surabaya.

III.5 Uji Fe_3O_4 sebagai Elektrokatalis Reduksi O_2 pada *Metal-air Batteries*

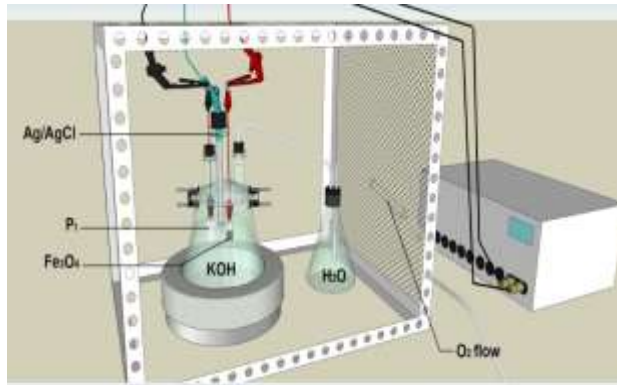
Sebelum dilakukan uji elektrokatalis, dilakukan pembuatan katoda dengan massa kering rata-rata 0,07 gram. Langkah-langkah pembuatan katoda sebagai berikut:

- Menyiapkan *template* berpori yaitu *nickel foam* dengan ukuran 1 cm x 2 cm.
- Mencampurkan serbuk magnetite sebanyak 0,015 gram dengan *Polyvinylidenedifluoride* (PVdF) sebagai binder yang berfungsi untuk merekatkan partikel magnetite ke *nickel foam* sebanyak 0,004 gram dan *N-Methylpyrrolidone* (NMP) sebagai *solvent* sekitar satu tetes kecil. Ketiganya diaduk hingga berbentuk tinta.
- Melapiskan tinta magnetite ke salah satu sisi *nickel foam* hingga rata.
- Mengeringkan *nickel foam* di dalam oven selama kurang lebih 6 jam.

Selanjutnya, dilakukan uji elektrokatalis untuk reaksi reduksi oksigen dari bahan nanopartikel magnetite dengan teknik elektrokimia yaitu *Cyclic Voltametry* (CV) dan Polarisasi linier. Teknik pengukuran ini digunakan untuk mengetahui kinerja elektrokatalis dengan terbentuknya reaksi dan kurva polarisasi akibat proses elektrokatalis yang disuplai oksigen.

1. *Cyclic Voltammetry* (CV)

Uji elektrokimia yaitu *Cyclic Voltametry* (CV) digunakan alat *Potensiostat* (HZ-3000 *Automatic Polarization*), yang menggunakan tiga sel elektroda yaitu nanopartikel magnetite yang terlapis pada *nickel foam* sebagai elektroda kerja, platina (Pt) sebagai elektroda lawan, dan Ag/AgCl sebagai elektroda acuan seperti pada Gambar III.6.



Gambar III.6 Skema Uji Elektrokatalis

Pada analisis ini digunakan larutan elektrolit Kalium Hidroksida (KOH) dengan konsentrasi 0,6 M. Tegangan diatur dalam rentang -0,5 V sampai 0,5 V dengan *scan rate* 0,1 mV/s. Hasil pengujian ini berupa kurva CV dan terdapat *peak* pada daerah katodik. Adanya *peak* di daerah katodik menunjukkan adanya reaksi reduksi oksigen yang bersifat *irreversible* karena pengaruh suplai oksigen terus-menerus yang memberikan efek jenuh di daerah tersebut. Nilai potensial reduksi terhadap pembanding elektroda Ag/AgCl dan elektroda hidrogen normal tersaji pada Tabel III.2.

Tabel III.2 Nilai Potensial Reduksi Terhadap Elektroda Pembanding Ag/AgCl terhadap Elektroda Pembanding NHE

No	Elektroda Pembanding	Reaksi reduksi	E vs. Ag/AgCl (V)	E vs. NHE (V)
1		$4\text{H}^+ + \text{O}_2 + 4\text{e}^- \rightarrow 2\text{H}_2\text{O}$	1,032	+ 1,23

2		$\text{MnO}_4^- + 2\text{H}_2\text{O} + 3\text{e} \rightarrow \text{MnO}_2 + 4\text{OH}^-$	0,39	+0,588
3	Ag/AgCl	$\text{AgCl} + \text{e} \rightarrow \text{Ag} + \text{Cl}^-$	0	0,198
4		$2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e} \rightarrow 2\text{H}_2 + 2\text{OH}^-$	-1,028	-0,83
5	H ₂ normal	$2\text{H}^+ + 2\text{e} \rightarrow \text{H}_2$	-0,198	0

2. Polarisasi Linear

Uji polarisasi linier juga menggunakan tiga elektroda seperti pada uji CV. Ketiga elektroda tersebut dihubungkan dengan alat *Potensiostat*, dalam larutan elektrolit KOH 0,6 M. Tegangan diatur dalam rentang -0,1 V sampai 0,1 V sehingga aliran arus saat terjadinya polarisasi bisa terukur dan *scan rate* 0,01 mV/s. Hasil pengujian ini ditunjukkan dalam bentuk kurva ORR ataupun OER. Kurva tersebut menghubungkan antara rapat arus dengan voltase pada elektroda kerja. Selain itu, dari kurva tersebut dapat diketahui laju dan batas reaksi yang terjadi.

halaman ini sengaja dikosongkan

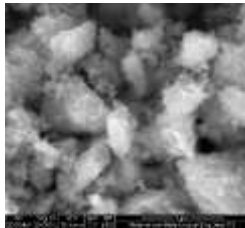
BAB IV

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

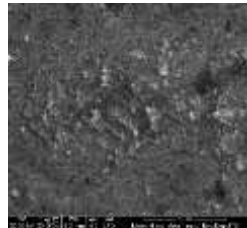
Pada penelitian ini dihasilkan partikel magnetite berupa serbuk halus berwarna hitam yang dapat ditarik magnet dengan kuat, seperti pada Gambar IV.1.



Gambar IV.1 Serbuk Magnetite Hasil Sintesis
Dengan menggunakan perbesaran 20.000x menggunakan uji SEM, didapatkan morfologi produk seperti pada Gambar IV.2



(a)



(b)

Gambar IV.2 Citra SEM Partikel Magnetite Hasil Sintesis pada pH 9 25 V dengan Perbesaran 20.000x (a) Sebelum *pretreatment* (b) Sesudah *pretreatment*

Berdasarkan hasil analisa SEM terlihat pada gambar IV.2 (a) partikel yang terbentuk menggumpal sehingga tidak terlihat jelas morfologi partikel magnetite sehingga dilakukan *pretreatment* dengan cara partikel magnetite disonikasi didalam larutan ethanol dan ditempatkan pada *silikon buffer* sebelum diuji menggunakan SEM. Gambar IV.2 (b) merupakan hasil uji SEM partikel magnetite setelah dilakukan *pretreatment*, didapatkan hasil

partikel magnetite yang tidak menggumpal akan tetapi perbesaran yang dipakai pada uji SEM hanya sebesar 20.000x sehingga gambar morfologi partikel magnetite yang didapat kurang terlihat jelas akan tetapi terlihat bahwa partikel magnetite berbentuk bola pejal.

Selama proses sintesis berlangsung, dilakukan pengamatan visual pada perubahan warna larutan elektrolit. Perubahan warna yang terjadi dimulai dari bening, kuning kecoklatan, coklat kemerahan, dan terakhir hitam. Saat larutan elektrolit berwarna hitam, hal ini menunjukkan bahwa magnetite telah terbentuk. Perubahan warna larutan elektrolit dapat dilihat pada Gambar IV.3



Gambar IV.3 Perubahan Warna Larutan Elektrolit

Waktu yang diperlukan larutan elektrolit untuk mencapai warna hitam berbeda untuk masing-masing variabel. Hal ini dipengaruhi oleh pH larutan dan voltase yang digunakan. Selain itu, pH larutan dan voltase yang digunakan juga mempengaruhi efisiensi sintesis serta karakteristik produk yang dihasilkan.

IV.1 Pengaruh pH Larutan Elektrolit dan Voltase terhadap Waktu Pembentukan Fe_3O_4 , Efisiensi Sintesis, dan Karakteristik Fe_3O_4

IV.1.1 Pengaruh pH Larutan Elektrolit

Dalam mengamati pengaruh pH larutan terhadap produk magnetite yang dihasilkan, digunakan pH larutan elektrolit netral yaitu mendekati 7, dan pH basa 8 – 14 dengan penambahan NaOH pada konstan voltase yaitu 25 V.

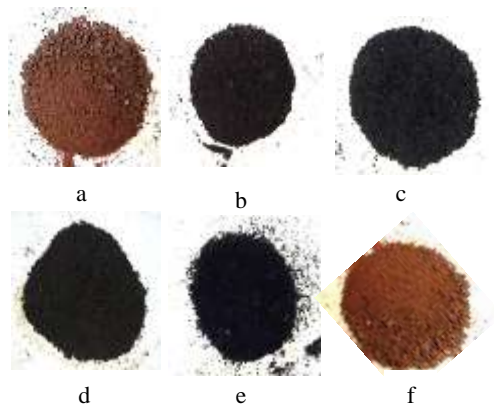
Pada pH larutan 7, 12, 13, dan 14 larutan elektrolit tidak berubah menjadi hitam, hal tersebut menandakan bahwa partikel

magnetite tidak terbentuk. Waktu yang dibutuhkan setiap variabel pH larutan elektrolit untuk membentuk partikel magnetite tersaji dalam Tabel IV.1 berikut:

Tabel IV.1 Waktu Pembentukan Partikel Magnetite pada Variabel pH

pH larutan Elektrolit	Waktu (menit)
7	-
8	88
9	75
10	69
11	61
12	-
13	-
14	-

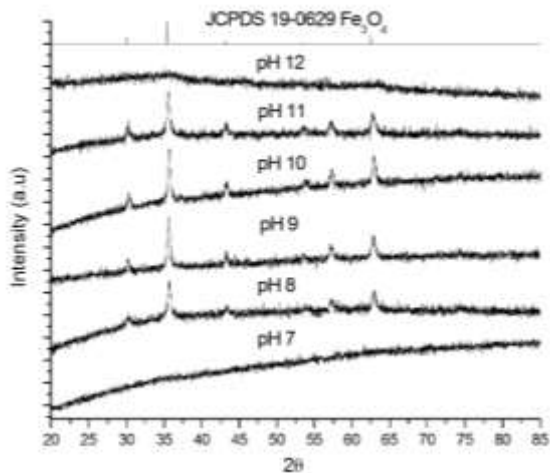
Berdasarkan Tabel IV.1, semakin tinggi pH larutan elektrolit yang digunakan dalam rentang pH 8 – 11, waktu yang dibutuhkan untuk membentuk partikel magnetite akan semakin cepat. Namun, pH larutan elektrolit terlalu tinggi tidak membentuk partikel magnetite. Hal ini disebabkan oleh adanya fenomena pasivasi dimana ion OH^- yang terbentuk menempel pada bagian anoda sehingga menutupi permukaan anoda yang menyebabkan reaksi oksidasi pada anoda tidak dapat berjalan. Sedangkan, untuk pH larutan 7, larutan hanya berubah menjadi coklat kemerahan. Sehingga serbuk magnetite yang dihasilkan berwarna kecoklatan. Berikut kenampakan fisik serbuk magnetite yang dihasilkan pada variabel pH larutan elektrolit dengan voltase 25 V:



Gambar IV.4 Kenampakan Fisik Serbuk Magnetite pada Voltase 25 V dengan pH Larutan Elektrolit (a) 7 (b) 8 (c) 9 (d) 10 (e) 11

Berdasarkan Gambar IV.4 pH 8, 9, 10, dan 11 menghasilkan serbuk magnetite berwarna hitam yang merupakan warna khas magnetite. Selanjutnya serbuk yang dihasilkan dari masing-masing pH diidentifikasi menggunakan analisis XRD dan didapatkan hasil sesuai dengan Gambar IV.5

Hasil analisis XRD menunjukkan pada pH 8, 9, 10, dan 11 jumlah puncak yang muncul sebanyak 6 yang bersesuaian dengan pola standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-0629) yakni pada sudut-sudut $30,5^\circ$, $35,9^\circ$, 37° , $43,5^\circ$, $53,6^\circ$, $57,3^\circ$, dan $63,1^\circ$. Sedangkan, pada pH 7 dan 12 menunjukkan tidak terdapat puncak yang muncul.



Gambar IV.5 Pola XRD Serbuk Magnetite Hasil Sintesis Variasi pH larutan Elektrolit pada 25 V

Tabel IV.2 Persen Kristalinitas Partikel Magnetite Variasi pH Larutan Elektrolit

pH larutan Elektrolit	Kristalinitas (%)
8	46,39
9	55,43
10	64,83
11	59,97

Kristalinitas merupakan tingkat keteraturan penempatan atom-atom dalam unit sel dan kisi kristal. Kristalinitas produk magnetite dihitung berdasarkan persamaan berikut:

$$\% \text{ Kristalinitas} = \frac{\text{Luas daerah kristalin}}{(\text{Luas daerah kristalin} + \text{Luas daerah amorf})} \times 100\%$$

Tabel IV.2 merupakan hasil perhitungan persen kristalinitas produk magnetite variasi pH pada 25 V. Luas daerah kristalin adalah luas puncak-puncak yang sesuai dengan JCPDS 19-0629, sedangkan luas daerah amorf adalah total luasan selain luas daerah kristalin. Dapat dilihat bahwa pada variasi pH terjadi kenaikan persen kristalinitas pada pH larutan elektrolit pH 8, pH 9, dan pH 10 sedangkan pada pH 11 terjadi penurunan kristalinitas produk yang dihasilkan.

Efisiensi proses masing-masing variabel pH larutan dapat dihitung dengan membagi banyaknya mol ion Fe yang terbentuk dengan mol teoritisnya. Mol teoritis terbentuknya ion Fe didapatkan menggunakan hukum Faraday sebagai berikut:

$$W = \frac{e \times i \times t}{F}$$

Dimana : W = massa ion Fe (gr)

e = massa ekuivalen = BM / e valensi

i = kuat arus (A)

F = tetapan Faraday = 96. 500 (columb)

Dari persamaan Faraday dapat dihitung massa ion Fe yang terbentuk sehingga dapat dihitung mol ion Fe dan dapat dihitung berdasarkan stokiometri mol teoritis produk magnetite yang terbentuk.

Tabel IV.3 Efisiensi Proses pada Variabel pH Larutan Elektrolit dengan 25 V

pH	Produk yang dihasilkan (gram)	Produk yang dihasilkan (mol)	Mol Teoritis	Efisiensi
7	0,78	0,0033	0,0078	43 %
8	0,75	0,0032	0,0067	48 %
9	0,69	0,0030	0,0056	54 %
10	0,41	0,0018	0,0045	40 %
11	0,22	0,0009	0,0034	28 %

Berdasarkan data di atas, untuk variabel pH larutan elektrolit dengan konstan voltase 25 V, efisiensi terbesar terjadi pada pH 9. Partikel magnetite juga dianalisis menggunakan BET untuk mengetahui *surface area* dan diameter partikel yang dihasilkan. Dengan hasil analisis SEM, partikel berbentuk bola pejal. Diameter partikel dapat dihitung dengan persamaan sebagai berikut.

$$\text{Diameter partikel} = \frac{6}{\rho \times a_s}$$

Dimana : ρ = densitas partikel magnetite = 4,87 (g/cm³)
 a_s = *surface area* (m²/g)

Tabel IV.4 *Surface area* dan Diameter Partikel Magnetite Variasi pH

pH	<i>Surface Area</i> (m ² /g)	Diameter Partikel (nm)
7	163,83	7,52
8	108,28	11,38
9	178,42	6,91
10	60,37	20,41
11	83,63	14,73

Partikel magnetite dengan pH 9 memiliki *surface area* yang paling besar. Hasil efisiensi dan *surface area* menjadi acuan untuk sintesis berikutnya dengan variabel voltase yaitu 10V, 20V, dan 30V dengan konstan pH larutan elektrolit 9.

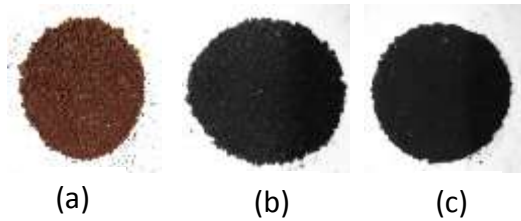
IV.2 Pengaruh Voltase Sintesis

Dalam mengamati pengaruh voltase sintesis terhadap produk magnetite yang dihasilkan, digunakan pH larutan elektrolit 9 dengan variasi voltase 10V, 20V, dan 30V. Waktu yang dibutuhkan masing-masing variabel voltase sintesis untuk membentuk partikel magnetite tersaji dalam Tabel IV.4 sebagai berikut:

Tabel IV.5 Waktu Pembentukan Partikel Magnetite pada Variabel Voltase

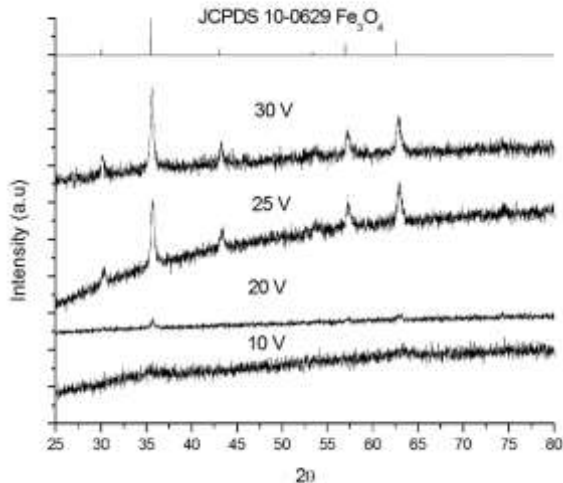
Voltase (V)	Waktu (menit)
10	141
20	71
30	36

Berdasarkan Tabel IV.4, semakin tinggi voltase sintesis yang digunakan maka waktu yang dibutuhkan untuk membentuk partikel magnetite akan semakin cepat. Kenampakan fisik serbuk magnetite yang dihasilkan pada variabel voltase sintesis dengan pH 9 sebagai berikut:



Gambar IV.6 Kenampakan Fisik Serbuk Magnetite pada pH 9 dengan Voltase Sintesis (a) 10 V (b) 20 V dan (c) 30

Berdasarkan Gambar IV.6 voltase sintesis 10V, 20V dan 30V menghasilkan serbuk magnetite berwarna hitam yang merupakan warna khas magnetite. Selanjutnya serbuk yang dihasilkan dari masing-masing pH diidentifikasi menggunakan analisis XRD dan didapatkan hasil sesuai dengan Gambar IV.7



Gambar IV.7 Pola XRD Serbuk Magnetite Hasil Sintesis dengan Variabel Voltase Sintesis pada pH 9

Hasil analisis di atas menunjukkan pada voltase 30 V dan 25 V jumlah puncak yang muncul sebanyak 6 yang bersesuaian dengan pola standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-0629) yakni pada sudut-sudut $30,5^\circ$, $35,9^\circ$, 37° , $43,5^\circ$, $53,6^\circ$, $57,3^\circ$, dan $63,1^\circ$. Sedangkan, pada voltase 20 V jumlah puncak yang muncul sebanyak 3 yang bersesuaian dengan pola standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-0629) dan pada voltase 10 V jumlah puncak yang muncul sebanyak 1 yang bersesuaian dengan pola standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-0629).

Tabel IV.6 Persen Kristalinitas Partikel Magnetite Variasi Voltase Sintesis

Voltase (V)	Kristalinitas (%)
10	-
20	21,87
25	55,43
30	74,16

Kristalinitas produk dihitung berdasarkan persamaan (1). Dari Tabel IV.6 menunjukkan bahwa patikel magnetite pada voltase 30 V memiliki kristalinitas tertinggi. Persen kristalinitas bertambah dengan semakin bertambahnya voltase sintesis. Sedangkan partikel magnetite pada voltase 10 V belum membentuk kristal atau masih berupa amorf.

Tabel IV.7 Efisiensi Proses pada Voltase Sintesis dengan pH 9

Voltase (V)	Produk yang dihasilkan (gram)	Produk yang dihasilkan (mol)	Mol Teoritis	Efisiensi
10	0,63	0,0027	0,067	12 %
20	1,49	0,0064	0,121	16 %

30	1,81	0,0078	0,179	13 %
----	------	--------	-------	------

Efisiensi proses masing-masing variabel voltase dapat dihitung dengan persamaan (2) Berdasarkan Tabel IV.7, besarnya voltase yang digunakan tidak banyak berpengaruh terhadap efisiensi karena hasil yang didapatkan ketiganya tidak jauh berbeda.

Untuk mengetahui karakteristik produk yang dihasilkan berupa *surface area* dan diameter partikel, dilakukan analisis BET dan didapatkan hasil partikel magnetite dengan voltase sintesis 10 V memiliki *surface area* paling besar sesuai dengan Tabel IV.6 berikut:

Tabel IV.8 *Surface area* dan Diameter Partikel Magnetite Variasi Voltase

Voltase (V)	<i>Surface Area</i> (m ² /g)	Diameter Partikel (nm)
10	127,09	9,69
20	41,13	29,95
30	24,88	49,52

Sehingga dapat disimpulkan bahwa, pengaruh kondisi awal operasi terhadap waktu pembentukan magnetite adalah semakin tinggi pH pada rentang pH 8-11 dan voltase yang digunakan maka waktu pembentukan magnetite semakin cepat. Untuk pengaruh kondisi awal operasi terhadap efisiensi sintesis, pH yang tidak terlalu tinggi atau rendah (pH 9) menghasilkan efisiensi terbaik. Sedangkan pH yang terlalu tinggi (pH 12, pH 13, pH 14) tidak dapat membentuk partikel magnetite. Voltase yang digunakan tidak banyak berpengaruh terhadap efisiensi karena hasil yang didapatkan tidak jauh berbeda. Untuk pengaruh kondisi awal operasi terhadap karakteristik produk, semakin tinggi pH larutan elektrolit dan voltase sintesis maka semakin meningkat kristalinitas produk yang dihasilkan. Sedangkan *surface area* produk semakin kecil seiring dengan meningkatnya voltase sintesis.

IV.2 Mekanisme Reaksi Pembentukan Magnetite

Pada penelitian ini, perubahan-perubahan visual yang terjadi selama sintesis diamati secara periodik. Perubahan yang terjadi antara lain, timbulnya gelembung-gelembung kecil pada permukaan anoda dan gelembung yang lebih besar di sekitar permukaan katoda, serta perubahan warna larutan elektrolit.

Sebagai contoh, pengamatan yang terjadi pada variabel larutan elektrolit dengan pH 8 dan 25 V dibagi menjadi tiga bagian waktu yang masing-masing durasinya 60 menit. Data pengamatan tersaji dalam tabel berikut:

Tabel IV.9 Hasil Pengamatan Visual Variabel Larutan Elektrolit pH 8 dan 25 V

Waktu (menit)	Hasil Pengamatan
1 – 60	Pada 15 menit pertama larutan elektrolit berubah dari bening (pH 8) menjadi kuning cerah (pH 9,8). Pada 45 menit berikutnya larutan elektrolit berwarna kuning kecoklatan (pH 9,8). Mulai banyak gelembung yang timbul dan endapan berwarna kuning kecoklatan mulai terbentuk.
61 – 120	Pada menit ke 61 hingga 75 larutan elektrolit berwarna coklat kemerahan (pH 10). Gelembung yang timbul semakin banyak, endapan coklat terbentuk di bagian atas dan bawah <i>beaker glass</i> dan berputar di sekitar elektroda.
121 – 180	Mulai menit ke 121 larutan elektrolit berwarna hitam (pH 10,5). Bagian atas larutan tertutup endapan hitam dan gelembung yang semakin banyak.

Berdasarkan tabel di atas, pada 60 menit pertama larutan elektrolit berwarna kuning kecoklatan dan gelembung yang muncul di sekitar anoda dan katoda menandakan telah terjadi reaksi dalam sintesis ini. Munculnya gelembung menandakan adanya H_2 yang terbentuk dari reaksi reduksi air pada katoda. Reduksi air juga menghasilkan ion OH^- guna memenuhi kebutuhan reaksi pembentukan magnetite, sesuai dengan reaksi berikut:



Seiring dengan waktu, gelembung tersebut semakin bertambah. Ion OH^- ini selanjutnya berdifusi menuju anoda dan menjadikan anoda yang pada awalnya netral menjadi bersuasana basa. Reaksi pembentukan magnetite diawali dengan oksidasi besi yang berperan sebagai anoda sesuai persamaan berikut:



Pada awal sintesis, ketika arus atau voltase belum diaplikasikan, larutan elektrolit tampak tidak berwarna. Perubahan warna yang kemudian terjadi menjadi kuning kecoklatan dan terbentuknya endapan dengan warna yang sama mengindikasikan terbentuknya $Fe(OH)_2$ sesuai dengan reaksi:



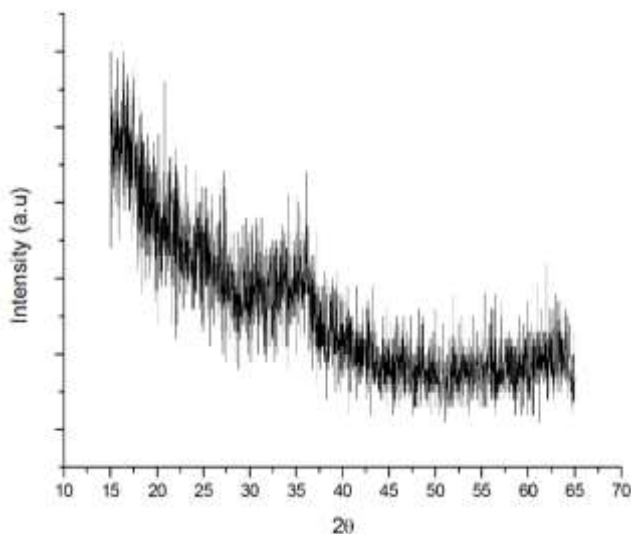
Peranan ion OH^- tidak hanya sampai di situ, sebab di anoda ion ini berperan penting dalam proses pembentukan magnetite. Oksidasi ion OH^- di anoda sesuai persamaan:



merupakan salah satu sumber oksigen terlarut yang dibutuhkan pada pembentukan senyawa intermediet $FeOOH$ sesuai dengan reaksi



Pembentukan FeOOH ini ditandai dengan adanya endapan berwarna coklat kemerahan yang terjadi pada 60 menit kedua. Pada menit ke 61 – 120 larutan elektrolit berwarna coklat kemerahan dengan jumlah endapan dan gelembung yang terbentuk semakin banyak. Endapan yang terbentuk kemudian dilakukan analisis XRD dan didapatkan hasil sebagai berikut:



Gambar IV.8 Hasil Analisis XRD Endapan Coklat Kemerahan

Tabel IV.10 *Peak List* pada Endapan Coklat Kemerahan

<u>Pos.[°2Th.]</u>	<u>Height[cts]</u>	<u>Reference</u>
36,14	6,75	FeOOH(JCPDS 44-1415)
39,74	2,72	FeOOH(JCPDS 44-1415)
57,72	4,90	FeOOH(JCPDS 44-1415)
63,25	2,42	FeOOH(JCPDS 44-1415)

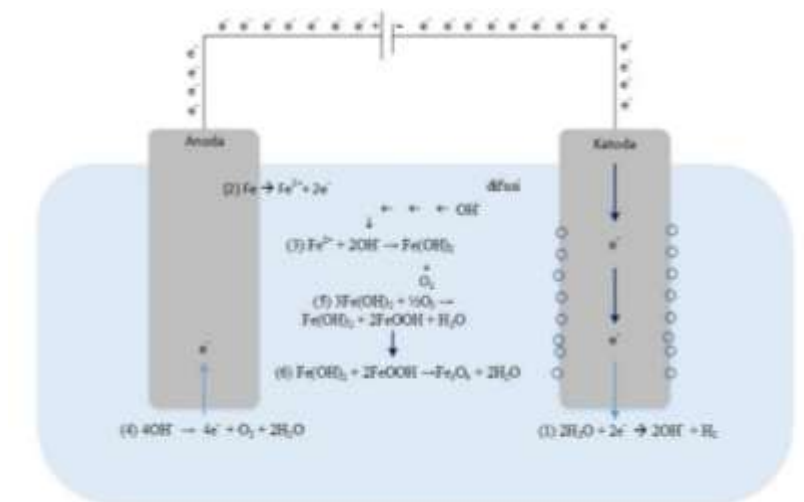
Berdasarkan Tabel IV.10 menunjukkan bahwa endapan coklat kemerahan merupakan FeOOH karena memiliki 4 *peak*

yang bersesuaian dengan pola standar FeOOH (JCPDS 44-1415) yakni pada sudut-sudut 36,14°, 39,75°, 57,72°, 63,26°.

Selanjutnya pada 60 menit ketiga, larutan elektrolit menjadi berwarna hitam dengan endapan hitam yang terbentuk di bagian atas dan bawah *beaker glass*. Warna hitam merupakan warna khas dari magnetite. Sehingga, endapan hitam tersebut mengindikasikan bahwa magnetite telah terbentuk sesuai dengan reaksi berikut:



Sehingga, dapat disimpulkan bahwa mekanisme pembentukan magnetite seperti pada gambar IV.8, dimulai dengan terbentuknya FeOOH berwarna kuning kecoklatan, kemudian Fe(OH)₂ yang berwarna coklat kemerahan, dan Fe₃O₄ atau magnetite berwarna hitam.



Gambar IV.9 Mekanisme Pembentukan Magnetite

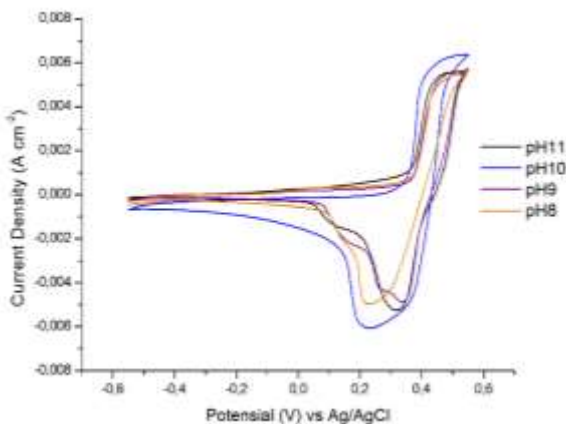
IV.3 Kinerja Magnetite sebagai Elektrokatalis

IV.3.1 Hasil Uji *Cyclic Voltammetry*

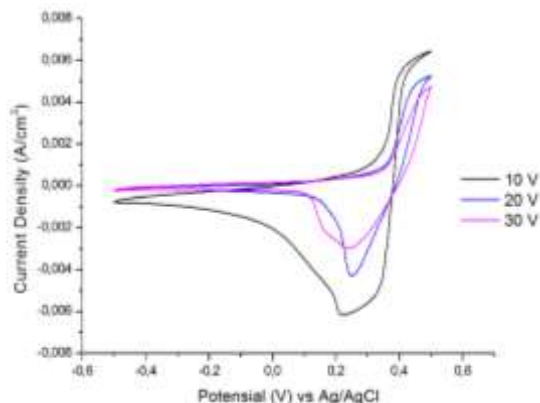
Hasil serbuk magnetite yang dihasilkan diuji dengan menggunakan *Cyclic Voltammetry* untuk mengetahui kemampuannya sebagai elektrokatalis reduksi oksigen pada *metal-air batteries*. Pada *metal-air batteries* dibutuhkan ion OH^- sebagai hasil dari reduksi oksigen. Terdapat beberapa reaksi redoks oksigen yang dapat terjadi, diantaranya seperti berikut :



Hasil dari uji *cyclic voltammetry* merupakan potensial reduksi reaksi berdasarkan elektroda referensi Ag/AgCl. Hasil yang didapat berupa grafik seperti pada gambar IV.10. Apabila pada grafik hasil uji *cyclic voltammetry* terdapat puncak pada bagian atas grafik maka terdapat reaksi oksidasi pada bagian anoda sedangkan apabila pada grafik hasil uji *cyclic voltammetry* terdapat puncak pada bagian atas grafik maka terdapat reaksi reduksi pada bagian katoda.



(a)



(b)

Gambar IV.10 Hasil Uji *Cyclic Voltammetry* (a) pada Variasi pH
(b) pada Variasi Voltase

Pada gambar IV.10 terlihat bahwa terdapat puncak pada bagian bawah grafik sehingga menandakan bahwa adanya reaksi reduksi yang terjadi pada bagian katoda. Hasil yang didapat merupakan nilai potensial berdasarkan Ag/AgCl. Nilai potensial standart Ag/AgCl bervariasi berdasarkan larutan yang digunakan didalam Ag/AgCl. Pada pengujian ini digunakan larutan KCL 0,3 M sebagai larutan didalam Ag/AgCl sehingga potensial standart Ag/AgCl sebesar 0,21 V sehingga didapatkan nilai potensial masing-masing pH seperti pada Tabel IV.11.

Tabel IV.11 Potensial Reaksi Reduksi Hasil Uji CV

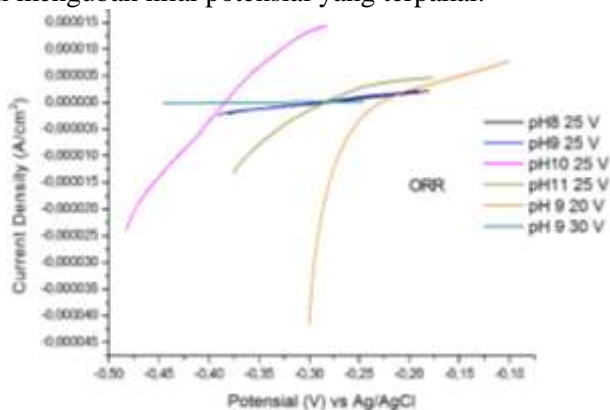
pH	Voltase (V)	Potensial (V) vs Ag/AgCl	Potensial (V)
8	25	0,24	0,45
9		0,38	0,59
10		0,32	0,53
11		0,22	0,43

9	10	0,22	0,43
	20	0,24	0,45
	30	0,22	0,43

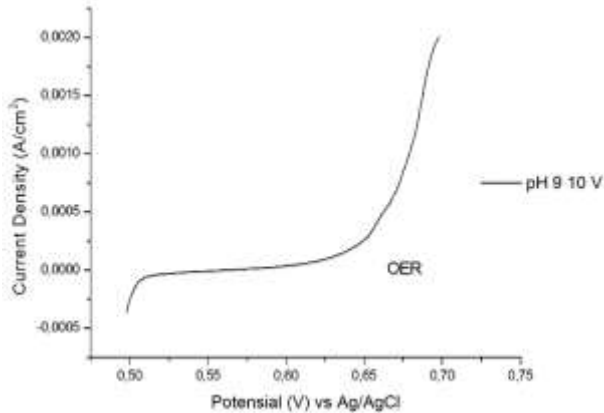
Berdasarkan Tabel IV.11 reaksi redoks oksigen yang sesuai adalah reaksi (7) dengan nilai potensial reaksi sebesar 0,4 V. Sehingga dapat disimpulkan bahwa partikel magnetite dapat digunakan sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries* dengan reaksi redoks oksigen seperti reaksi (7).

IV.3.2 Hasil Uji Polarisasi Linier

Pengujian polarisasi linier ini bertujuan untuk mencari nilai OCP (*Open Circuit Potensial*) dan *current density* ORR (*Oxygen Reduction Reaction*) dan OER (*Oxygen Evolution Reaction*) tertinggi. *Open circuit potensial* merupakan nilai potensial elektroda kerja pada saat kondisi stabil atau kondisi dimana tidak ada potensial dan arus yang mengalir. Nilai potensial reduksi oksigen pada reaksi (7) yaitu 0,4 V atau 0,19 V vs Ag/AgCl merupakan nilai potensial batas antara ORR dan OER. Daerah dibawah nilai potensial reduksi oksigen merupakan daerah terjadinya ORR sedangkan daerah diatas potensial reduksi oksigen merupakan daerah terjadinya OER. Nilai *current density* tertinggi merupakan nilai maksimal pertambahan arus yang dihasilkan dengan mengubah nilai potensial yang terpakai.



(a)



(b)

Gambar IV.11 Hasil Uji Polarisasi Linier (a) daerah terjadinya ORR (b) daerah terjadinya OER

Dari gambar IV.11 (a) menunjukkan bahwa sample magnetite yang diuji dapat mereduksi oksigen. Partikel-partikel tersebut merupakan partikel kristal. Sedangkan pada gambar IV.11 (b) menunjukkan bahwa sample magnetite yang diuji tidak dapat mereduksi oksigen. Partikel magnetite yang disintesis pada pH 9 dan voltase 10 V merupakan partikel amorf. Sehingga dapat disimpulkan bahwa partikel magnetite kristal merupakan partikel yang dapat mereduksi oksigen dan tepat untuk digunakan sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries*. Untuk menentukan partikel mana yang memiliki kemampuan terbaik sebagai elektrokatalis dapat dilihat dari nilai *current density* tertinggi pada daerah ORR.

Tabel IV.12 *Current Density* Tertinggi pada Daerah ORR

pH	Voltase (V)	<i>Current Density</i> (A/cm ²)
8	25	$0,21 \times 10^{-5}$
9		$0,22 \times 10^{-5}$
10		$1,4 \times 10^{-5}$
11		$0,48 \times 10^{-5}$
9	20	$0,90 \times 10^{-5}$
	30	$0,01 \times 10^{-5}$

Berdasarkan Tabel IV.8 nilai *current density* tertinggi sebesar $1,4 \times 10^{-5}$ pada sampel magnetite pH 10 25 V. Akan tetapi nilai *current density* yang didapatkan tidak jauh berbeda hal ini menunjukkan bahwa pH larutan elektrolit dan voltase sintesis tidak berpengaruh signifikan terhadap nilai *current density* yang dihasilkan.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

V.1 Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, dapat diambil kesimpulan sebagai berikut :

1. Pengaruh kondisi awal operasi (pH larutan elektrolit dan voltase):
 - Terhadap waktu pembentukan, semakin tinggi pH larutan elektrolit dalam rentang pH 8 – 11 dan semakin tinggi voltase sintesis yang digunakan maka semakin cepat waktu yang dibutuhkan untuk membentuk magnetite.
 - Terhadap efisiensi sintesis, pH larutan elektrolit yang tidak terlalu tinggi atau rendah (pH 9) menghasilkan efisiensi sintesis terbaik sebesar 54 %. Sedangkan voltase sintesis tidak banyak berpengaruh karena hasil efisiensi yang didapatkan tidak jauh berbeda.
 - Terhadap karakteristik produk, semakin tinggi voltase sintesis maka semakin meningkat kristalinitas produk yang dihasilkan. Sedangkan untuk *surface area*, pada pH larutan elektrolit yang tidak terlalu tinggi atau rendah (pH 9) menghasilkan *surface area* terbesar yaitu 178,42 m²/g, namun akan mengecil seiring dengan meningkatnya voltase sintesis.
2. Mekanisme reaksi pembentukan magnetite dimulai dari perubahan warna elektrolit dari bening menjadi kuning kecoklatan yang merupakan Fe(OH)₂, kemudian warna coklat kemerahan yang merupakan FeOOH, dan warna hitam yang mengindikasikan terbentuknya Fe₃O₄.
3. Partikel magnetite kristal dapat digunakan sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *Metal-air Batteries* dengan *current density* terbesar pada sampel pH

10 25 V sebesar $1,40 \times 10^{-5}$ A. Sedangkan partikel magnetite amorf tidak dapat digunakan sebagai elektrokatalis reaksi reduksi oksigen pada *Metal-air Batteries*.

V.2 Saran

Saran yang dapat diberikan apabila dilakukan penelitian yang sama di waktu mendatang, sebaiknya sebelum dilakukan uji karakteristik SEM dengan perbesaran lebih dari 30.000x dan terlebih dulu dilakukan *pretreatment* agar didapatkan hasil yang memuaskan. Melakukan uji *cyclic voltametri* dan polarisasi linier menggunakan variasi *scan rate*.

DAFTAR PUSTAKA

- Chandra, Victoria A. P., dan Kantanegara, Aquiline N. 2015. Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia dengan Bantuan Chelating Agent. Surabaya. Skripsi Departemen Teknik Kimia FTI-ITS.
- Cheng, F. dan Chen, J. (2012) 'Metal-air batteries: from oxygen reduction electrochemistry to cathode catalysts', *Chemical Society Reviews*, 41(6), p. 2172. doi: 10.1039/c1cs15228a.
- Cornell, R.M. and Schwertmann, U. 2003. The Iron Oxide Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.
- Fajaroh, F. dkk. (2012) 'Synthesis of magnetite nanoparticles by surfactant-free electrochemical method in an aqueous system', *Advanced Powder Technology*, 23(3), pp. 328–333. doi: 10.1016/j.appt.2011.04.007.
- Li, Y. dkk. (2013) 'Advanced zinc-air batteries based on high-performance hybrid electrocatalysts', *Nature Communications*. Nature Publishing Group, 4(May), pp. 1805–1807. doi: 10.1038/ncomms2812.
- Meiditaharja, P., Dewayanti, N. 2016. Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia Menggunakan Multielektroda. Surabaya. Skripsi Departemen Teknik Kimia FTI-ITS.
- Pusfitasari, Memik D., dan Rachman, Karina A. 2015. Sintesis Nanopartikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia Menggunakan Pulsed Direct Current (PDC). Surabaya. Skripsi Departemen Teknik Kimia FTI-ITS.
- Raharjo, Wahyu. 2009. Sintesa Nanopartikel Magnetik dengan Metode Elektrokimia. Surabaya. Skripsi Departemen Teknik Kimia FTI-ITS.
- Setyawan, H. dkk. (2012) 'Synthesis of Magnetite Nanoparticles by Electrochemical Method Using Pulsed-Direct Current', (February), pp. 23–24. doi: 10.1016/j.appt.2011.04.007.5.

Teja, A.S., Koh, P. Y. 2008. Syntesis, Properties, and Applications of Magnetic Iron Oxide Nanoparticles. Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, xx: 1-24

APPENDIKS

1. Perhitungan Efisiensi Sintesis:

Contoh pada sintesis dengan pH 9 25 V

Massa endapan magnetite produk = 0,6954 gr

BM Magnetite = 231

Mol endapan magnetite produk = $\frac{0,6954}{231} = 0,003 \text{ mol}$

Mol Fe^{2+} yang digunakan = $0,003 \times 3 = 0,009 \text{ mol}$

Arus = $0,4 \text{ A} \times 8 \text{ elektroda} = 3,2 \text{ A}$

Luas Besi Tercelup = 192 cm^2

Menghitung mol Fe^{2+} teoritis yang digunakan dengan Hukum Faraday:

$$W = \frac{e \times i \times t}{F}$$

Dimana : W = massa ion Fe teoritis (gr)

e = massa ekuivalen = BM / elektron valensi

i = kuat arus (A)

F = tetapan Faraday = 96. 500 (columb)

t = Waktu sintesis = 180 menit

$$W = \frac{\left(\frac{BM}{2}\right) \times 3,2 \times 180}{96500}$$

$$\frac{W}{BM} = \frac{0,4 \times 3,2 \times 180}{96500}$$

$$n = 0,0224 \text{ mol}$$

$$\text{Efisiensi} = \frac{\frac{\text{mol Fe terpakai}}{\text{mol Fe teoritis}} \times 100\%}{0,0224}$$

$$\text{Efisiensi} = \frac{0,009}{0,0224} \times 100\%$$

$$\text{Efisiensi} = 54 \%$$

2. Perhitungan Diameter:

Asumsi partikel berbentuk silinder pejal, maka diameter partikel dapat dihitung berdasarkan:

$$\text{Diameter partikel} = \frac{6}{\rho \times a_s}$$

Dimana, ρ = densitas partikel magnetite = 5127,58 kg/m³
= 5,127 g/m³

a_s = *surface area* (m²/g).

Contoh perhitungan sintesis pH 9 25 V dengan *surface area* = 178,42 m²/g

$$\text{Diameter partikel} = \frac{6}{5,127 \times 178,42} = 6,91 \text{ nm}$$

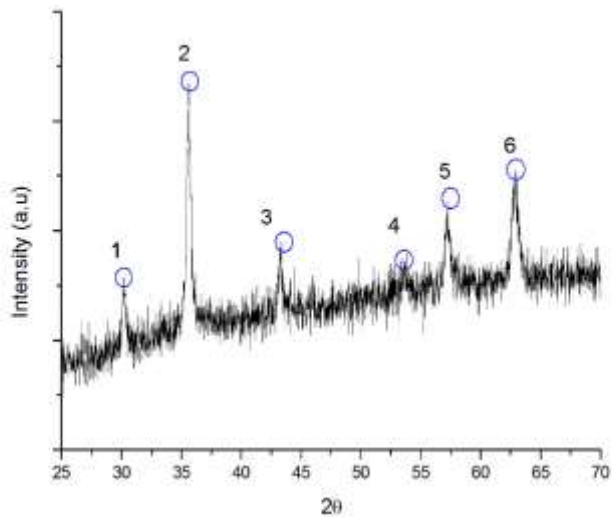
3. Perhitungan Kristalinitas :

Berdasarkan persamaan:

% *Kristalinitas*

$$= \frac{\text{Luas daerah kristalin}}{(\text{Luas daerah kristalin} + \text{Luas daerah amorf})} \times 100\%$$

Luas daerah kristalin dan amorf didapatkan menggunakan luasan segitiga berdasarkan grafik XRD dengan bantuan aplikasi ImageJ. Daerah Kristal merupakan daerah yang cocok dengan JCPDS Fe₃O₄. Contoh perhitungan pada pH 9 25 V.



Luasan daerah kristal 1	= 939 cm ²
Luasan daerah kristal 2	= 2280 cm ²
Luasan daerah kristal 3	= 483 cm ²
Luasan daerah kristal 4	= 432 cm ²
Luasan daerah kristal 5	= 897 cm ²
Luasan daerah kristal 6	= 1134 cm ²
Luasan daerah total	= 11121 cm ²

$$\% \text{ Kristalinitas} = (939+2280+483+432+897+1134)/11121 \times 100\% = 55,43 \%$$

BIOGRAFI PENULIS



OKY IYAN PRATAMA dilahirkan di Kota Surabaya pada 19 Oktober 1995. Penulis merupakan anak pertama dari empat bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal sejak tahun 2001 di SD Negeri Sawunggaling VII Surabaya, SMP Negeri 16 Surabaya, dan SMA Negeri 15 Surabaya. Setelah lulus dari SMA, penulis meneruskan pendidikan formalnya di Jurusan Teknik Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya pada tahun 2013. Semasa

kuliah, penulis mempunyai hobi membaca dan futsal. Selain itu, penulis juga pernah melaksanakan kerja praktik di PT. Rekayasa Industri. Tugas Akhir, sebagai syarat kelulusan jenjang S-1 ditempuh penulis di Laborarium Elektrokimia dan Korosi, di bawah bimbingan Prof. Dr. Heru Setyawan, M.Eng. dan Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T. dengan bidang Sintesis Fe_3O_4 menggunakan metode elektrokimia sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries*. Penulis dapat dihubungi melalui email: okyiyan19@gmail.com

BIOGRAFI PENULIS



RIZKIYAH FITRI IZZATI dilahirkan di Kota Gresik pada 09 Mei 1995. Penulis merupakan anak kedua dari dua bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal sejak tahun 2001 di SD Negeri Tropodo I, SMP Negeri 22 Surabaya, dan SMA Negeri 15 Surabaya. Setelah lulus dari SMA, penulis meneruskan pendidikan formalnya di Jurusan Teknik Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya pada tahun 2013. Semasa kuliah, penulis mempunyai hobi membaca dan travelling. Selain itu, penulis juga pernah melaksanakan kerja praktik di PT. PETROKIMIA GRESIK. Tugas Akhir, sebagai syarat kelulusan jenjang S-1 ditempuh penulis di Laborarium Elektrokimia dan Korosi, di bawah bimbingan Prof. Dr. Heru Setyawan, M.Eng. dan Ni Made Intan Putri Suari, S.T., M.T. dengan bidang Sintesis Fe_3O_4 menggunakan metode elektrokimia sebagai elektrokatalis pada *metal-air batteries*. Penulis dapat dihubungi melalui email: rizkiyahftr@gmail.com